

明細書

液状組成物、その製造方法、低誘電率膜、研磨材および電子部品
発明の属する技術分野

- 本発明は、ダイヤモンド微粒子を分散させた液状組成物と、絶
縁膜としてダイヤモンド微粒子からなるポーラス構造低誘電率薄膜と、
この低誘電率薄膜を有する高集積度、高速動作型の半導体集積回路素子
などの電子部品に関する。

背景技術

- 半導体集積回路素子のうち、特に超 L S I デバイスでは、配線の微細
化・高集積化に伴い、デバイス中に作られる配線を通る信号の遅延が、
消費電力を低下させようという問題とともに大きな課題となっている。
特に高速ロジックデバイスでは、配線の抵抗や分布容量による R C 遅延
が最大の課題となっており、中でも分布容量を小さくするために、配線
間の絶縁材料に低誘電率の材料を用いることが必要とされている。

- 従来、半導体集積回路内の絶縁膜としては、シリカ膜 (SiO_2)、酸
化タantal膜 (Ta_2O_5)、酸化アルミニウム膜 (Al_2O_3)、窒化珪素
膜 (Si_3N_4) などが使用され、特に多層配線間の絶縁材料として、窒
化珪素膜、有機物やフッ素を添加したシリカ膜が低誘電率膜として使用
され、或いは、検討されている。また、さらなる低誘電率化のための絶
縁膜として、フッ素樹脂、発泡性有機シリカ膜を焼成したシリカ膜、シ
リカ微粒子を堆積したポーラスシリカ膜などが検討されている。

ここで、従来、低誘電率として知られている材料を次表に列挙する。

材料名	比誘電率
シリカ (プラズマ C V D 法)	4.2 ~ 5.0
フッ素添加シリカ	3.7

	2
ダイヤモンド	5.68
ポーラスシリカ	1.5～2.5
ポーラスダイヤモンド	2.1～2.72
ポリイミド	3.0～3.5
5 ポリテトラフルオロエチレン	1.9
空気	1.0

前述のように、さらなる集積度の向上のために、フッ素添加シリカの比誘電率 3.7 を下まわる材料を得るために種々研究がなされている。シリカ膜は、それ自体は電気陰性度の高い酸素と珪素の 2 種類の元素からなるため、配向分極が残り低誘電率膜としては不十分であることから、発泡法あるいは微粒子によるポーラスシリカが検討されている。しかし、これらは強度が不十分で実用化には至っていない。また、フッ素樹脂であるポリテトラフルオロエチレンは、十分な比誘電率を有するものの、半導体製造工程における空気中での要求耐熱性 400℃以上という過酷な条件が満たされないため使用することが出来ない。ポリイミドは耐熱性樹脂ではあるが、400℃以上では炭化してしまい、やはり使用することが出来ない。

他方、ダイヤモンドは熱伝導度や機械的強度が、他の材料より優れているため、集積度が高く発熱量の多い半導体デバイスには、放熱に好適な材料として、近年、研究されている。例えば、特開平 6-97671 号公報には、スパッタ法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法などの製膜法により、厚さ 5μm のダイヤモンド膜が提案されている。また、特開平 9-263488 号公報では、ダイヤモンド微粒子を基板上に散布し、これを核に CVD（化学蒸着堆積）法により炭素を供給してダイヤモンド結晶を成長させる製膜法を提案している。

本発明者らは、すでに特開 2002-110870 号公報に提示した

ように、ポーラス構造のダイヤモンド微粒子膜によって比誘電率 2.7
2 を得た。また、特開平 2002-289604 号公報では、ヘキサクロ
ロジシロキサン処理によりダイヤモンド微粒子間を架橋結合させて強
化する方法を提案したが、この処理によっても、同等な比誘電率が得ら
5 れることを示した。さらに本発明者らは、ダイヤモンド微粒子を精製す
ることにより、比誘電率 2.1 が得られることを学会で発表している(第
50 回応用物理学関係連合講演会要旨集 NO. 2, p 193 (2003))。

発明の開示

10 本発明者らは、前述のように十分な比誘電率と強度の低誘電率膜を得
たが、さらに研究を進めると、基板に塗布する前のダイヤモンド微粒子
水性液状組成物の濃度が一定であるにもかかわらずコロイド状態が不安
定であり、長時間放置するとゼリー状にゲル化したり、沈殿もしくは層
分離を生じたりするため、ポーラス構造の安定した厚さの膜が得られな
15 かった。特開平 9-25110 号公報には、このコロイド状態の不安定
さについては触れていないが、硫酸や硝酸などで精製処理することによ
って親水性ダイヤモンド微粒子が得られるのは、粒子表面に水酸基が生
成しているからであると説明し、分散媒として水やアルコールを提案し
ている。しかし、本発明者らがダイヤモンド微粒子水性液状組成物にエ
20 チルアルコールを添加したところ、粘度は低下したがゲル化現象は解決
できなかった。

元来、爆発法で製造されたダイヤモンド微粒子粗原料は、不純物とし
て非晶性炭素やグラファイトを含有しているため、本発明者らは、濃硫
酸や濃硝酸で酸化精製して不純物を除去している。本発明者らは、この
25 研究の過程で、処理後、十分水洗した後であっても PH は 2.0 から 4.
5 の酸性を示し、ダイヤモンド微粒子が濃硝酸、硝酸塩、過塩素酸、過

塩素酸塩、過酸化水素、濃硫酸などの精製剤で処理されると、その表面には、ヒドロキシル基のみならずカルボキシ基を生成し、また濃硫酸で処理されると、これらに加えてさらにスルホ基が生成することを見出した。

5 そこで本発明者らは、ダイヤモンド微粒子と水性分散媒とからなる液状組成物に、アミン性物質を添加すると、粘度が劇的に低下し、数週間放置してもゲル化、沈殿および層分離もせず安定なコロイド状態が持続することを見出し、本発明に至った。

本発明によって、アミン性物質を含むダイヤモンド微粒子液状組成物はゲル化及び沈殿を生ずることなく、安定した低い粘度を維持することができ、パイプ輸送も可能になり、塗布装置としてあらゆる型式のものが利用できるため、低誘電率膜を有する半導体集積回路素子などの工業化にむけて大きな前進をすることができた。

また、本発明のアミン性物質を含むダイヤモンド微粒子液状組成物は、
15 半導体ウェハの表面研磨用など工業用研磨材として使用することができ、
特にダイヤモンド微粒子を分散させた液状研磨剤の他、強力紙や基布に
バインダーと共に塗布した研磨紙、研磨布、砥石状に固めた研磨部品な
どに応用して使用することができる。

20 図面の簡単な説明

図1は、本発明のダイヤモンド微粒子液状組成物と比較例のダイヤモンド微粒子液状組成物との、粘度一回転数の関係を示すグラフである。

図2は、本発明の液状組成物の分散質粒子径分布を示すグラフである。

図3は、本発明の他の実施例である液状組成物の分散質粒子径分布を示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

本発明で用いるアミン性物質は、粗ダイヤモンドを酸化精製した後の酸性分散液のpHを上昇させる作用を示す、分散媒に可溶性の物質であれば特に限定されない。

- 5 液状組成物を半導体素子用の絶縁膜形成用途に使用する場合には、アミン性物質を使用することが好ましく、金属水酸化物はコンタミネーションの観点から好ましくない。一方、液状組成物を研磨材用途に使用する場合には、アミン性物質が好ましい。

- アミン性物質は、アミン構造を有する有機、無機化合物であり、アンモニア、モノアルキルアミン、ジアルキルアミン、トリアルキルアミン、
10 N-モノアルキルアミノエタノール、N,N-ジアルキルアミノエタノール、アニリン、N-モノアルキルアニリン、N,N-ジアルキルアニリン、モルホリン、N-アルキルモルホリン（前記アルキル基はC₁~C₁₂）、モノ（アルキル置換フェニル）アミン、ジフェニルアミン、トリ
15 フェニルアミン、ベンジルアミン、N-モノアルキルベンジルアミン、N,N-ジアルキルベンジルアミン、N-アルキルジフェニルアミン、トリフェニルアミン、ピリジン、アルキル置換ピリジン、モノエタノールアミン、ジエタノールアミン、トリエタノールアミン、テトラアルキルアンモニウムヒドロキシドを例示できる。アミン性物質が揮発性で
20 ある場合には、加熱処理により揮散させることができ、絶縁膜に残存する事もないため悪影響を及ぼす事もない。

- これらアミン性物質のうち、沸点が50℃以上、300℃以下、好ましくは50℃以上、200℃以下のアミンが好ましい。なぜなら、ダイヤモンド微粒子表面のカルボキシ基、スルホ基と造塩しているアミン性
25 物質が、室温で液状組成物から揮散する事がなく、成膜後、分散媒とともに加熱によって揮散させることが好ましいからである。

液状組成物におけるアミン性物質の添加量は、ダイヤモンド微粒子の粒子径及びアミン性物質の種類により異なるが、ダイヤモンド微粒子 100 重量部に対して、1 重量部以上が好ましく、2 重量部以上が更に好ましい。また、アミン性物質の添加量は、200 重量部以下が好ましく、5 50 重量部以下が更に好ましい。具体的には、実施例に記載する。

分散液中におけるダイヤモンド微粒子の量は、分散液全体を 100 重量%としたときに、1 重量%以上が好ましく、2 重量%以上が更に好ましい。また、分散液中におけるダイヤモンド微粒子の量は、分散液全体を 100 重量%としたときに、50 重量%以下が好ましく、20 重量% 10 以下が更に好ましい。

本発明のダイヤモンド微粒子液状組成物は、分散媒として、水、メタノール、エタノール、n（または i s o）-プロパノール、n（または i s o、s e c、あるいは t e r t）-ブタノール、アセトン、ベンゼン、トルエン、o（または / 及び m、p）-キシレン、ヘキサン、シクロヘキサン、ガソリン、灯油、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、ブチルセロソルブ、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキシドなどからなる群から選ばれる少なくとも 1 種を単独または数種を混合して用いることができる。これらのうち、ダイヤモンド微粒子表面のカルボキシ基、スルホ基とイオン反応させるために、水、20 水溶性分散媒および水と水溶性分散媒との混合物がもっとも好適である。水溶性分散媒としては、メタノールやエタノール、イソプロパノール、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドなど親水性有機分散媒を例示できる。他方、本発明では、ダイヤモンド微粒子に前記アミン性物質のうち特定のものを選んで添加すると親油性となり有機系分散媒にも 25 良好に分散する。

ダイヤモンド微粒子は、その精製工程の前または / 及び後、または /

及びダイヤモンドコロイド作成前に一次粒子に分散させる事ができる。
この分散方法としては、ホモジナイザー、ボールミル、サンドミル、ビーズミルなど公知の装置を使用することができる。また、分散剤として公知のアニオン系界面活性剤、ノニオン系界面活性剤、各種消胞剤を使用することができる。勿論、本発明で用いるアルカリ性物質を用いてもよい。ただし、薄膜化して電子材料として利用する場合は、金属イオンを含有しない物質を用いる事が好ましい。

ダイヤモンド微粒子を一次粒子に分散させる場合、未精製ダイヤモンドを酸処理にて（少しでも）精製し、その後上記公知の装置にて本発明
10 で用いるアルカリ性物質を添加して分散させ、再度酸処理にて精製を行うことが望ましい。この手順によって得られたダイヤモンド微粒子を分散媒に分散させると粒子径が小さく、かつ非常に安定に分散したダイヤモンドコロイド溶液を得ることが出来る。尚、ダイヤモンド微粒子を精製した後一旦乾燥する場合がある。この際の乾燥方法は、通常の加熱乾燥
15 してもよいが、微粒子の凝結を防ぐために常温での風乾法や凍結乾燥法が好ましい。また、完全に乾燥させるのではなく、一定濃度のペースト状に留めて次工程に送ることもできる。

本発明のダイヤモンド微粒子液状組成物は、前記のアルカリ性物質添加により粘度が低くなっているため、用途によっては粘度を調節するため
20 めに、ダイヤモンド微粒子濃度を調整してもよいし、増粘材を添加して調節してもよい。増粘材としては、水性分散媒中ではポリエチレングリコール、カルボキシメチルセルローズ、ポリアクリルアミド、ポリビニルアルコール、スチレンー無水マレイン酸共重合体加水分解物、イソブチレンー無水マレイン酸共重合体加水分解物など、また、油性分散培中
25 ではポリスチレン、スチレンー無水マレイン酸共重合体、イソブチレンー無水マレイン酸共重合体、ポリアクリル酸エステルなどを用いる事が

できる。これらの中ではポリエチレングリコールが好ましく、その分子量は200から1000万の範囲のものが使用できる。

本発明では、粘度が安定し且つ任意の粘度が得られるため、液状組成物の塗布装置としてあらゆる型式、例えばスピン塗布装置、スプレー塗
5 布装置、バーコータ、ナイフコータ、インクジェット塗布装置などが使用できるようになった。また、ゲル化することがないため液状組成物のパイプ輸送も可能である。

本発明に用いる原料ダイヤモンド微粒子は、電子顕微鏡写真による測定で、一次粒子径が1 nmから50 nmの固体粒子であり、好ましくは
10 2 nmから20 nmの粒子である。また、ダイヤモンド純度は95%以上に精製されている事が好ましく、不純物としてはグラファイトや非晶質炭素が少量含まれていてもよい。

一般にこのようなナノメートル単位の微粒子は、コロイド液状に分散させても容易に一次粒子には分散せず、数百 nm から数千 nm に凝集し
15 た分散質を形成している。本発明では、前記アルカリ性物質、特にアミン性物質の存在下において、公知のボールミルやビーズミルによる分散操作により、ダイヤモンド微粒子分散質の数千 nm の平均粒子径を数 nm から数十 nm に低下させ、コロイド安定性をもたらす事ができたのである。特に硫酸を含む処理のより、ダイヤモンド微粒子表面にスルホ基
20 を生成させた場合、その効果は顕著であった。

前記本発明のダイヤモンド微粒子液状組成物は、基板上に塗布して、空隙を有するダイヤモンド微粒子低誘電率膜を製造する事ができる。空隙率は、40%から70%である事が好ましい。塗布後、この膜はヘキサクロロジシロキサンなどで強化してもよい。また、この低誘電率膜は
25 電気的特性を向上させるために、バリウム塩などの水溶液で処理し、ダイヤモンド微粒子表面にあるカルボキシ基やスルホ基を不溶化してもよ

い。

本発明のダイヤモンド微粒子膜は、空隙を有しているため、当然その表面は粗であるから、表面緻密化を行う事ができる。そのためには、S O G (Spin on Glass) 法、S G (Silicate Glass) 膜法、B P S G (ホ
5 ウ素燐 SG) 膜法、プラズマ C V D 法など公知の方法を用いる事ができる。

本発明は、前記ダイヤモンド微粒子低誘電率膜を有する半導体集積回路素子を含む。即ち、回路を描画した単結晶シリコン基板や、導電膜や回路を描画したガラス基板に、前記液状組成物を塗布して絶縁膜を形成
10 させ、所望の処理を公知の方法を利用して、高集積度、高速動作型の半導体集積回路素子などの電子部品を、製造することができる。この他、本発明の低誘電率膜を有する一般の半導体素子やマイクロマシン、コンデンサなどの電子部品であってもよい。

また、半導体ウエハの表面研磨用など工業用液状研磨剤として安定し
15 た粘度特性を要求される用途への展開も可能となった。尚、工業用液状研磨剤には、アミン性物質とともに、残留しても問題とならない苛性ソーダ、苛性カリウム、水酸化リチウムなどアルカリ金属や、水酸化カルシウム、水酸化バリウムなどのアルカリ土類金属などのアルカリ性物質を使用することができる。これらの金属水酸化物は揮発性がない。従っ
20 て、本発明の液状組成物の塗膜や成形物を乾燥させると、分散媒は揮発するが、研磨材の主成分（ダイヤモンド粒子）に加えて金属水酸化物が研磨材中に残留する。むしろ、アルカリ性物質として、揮発性のアミン性物質のみを使用する場合には、研磨材にはアルカリ性物質は実質的に残留しない。また、本発明の液状組成物または研磨材は、公知の CMP
25 法 (Chemical Mechanical Polishing) に使用するために、シュウ酸などの研磨促進剤を含んでもよい。

実施例

以下に本発明の実施例を記すが、本発明は実施例にのみ限定されるものではない。

5 (実施例 1)

<原料ダイヤモンドの精製>

爆発法で製造した市販のクラスタダイヤモンド（電子顕微鏡法平均粒子径：5 nm、ラマンスペクトル法測定：ダイヤモンド80%、グラファイト6%、非晶質炭素約10%、炭素一重結合成分4%）0.6 gを
10 10%濃硝酸－濃硫酸55 mlとともに石英製フラスコに入れ、300から310℃で2時間煮沸した。室温に冷却した後、多量の水を加えて遠心分離しそれに続くデカンテーションを繰り返して、PHが3を超えるまで精製し、これを凍結真空乾燥して精製ダイヤモンド微粒子とした。この純度を測定したところ、ダイヤモンド96.5%、グラファイト
15 1.5%、非晶質炭素約0%、炭素一重結合成分2.5%であった。

<液状組成物の調製>

石英製ビーカーに、精製ダイヤモンド微粒子5重量%となるように水とともに仕込み、ポリエチレングリコール600を1重量%となるように添加し、超音波水槽にそのビーカーを浸して2時間かけて十分分散させて
20 粘稠な分散液を得た。これに、0.1重量%のジメチルアミノエタノールを添加してよく攪拌しE型粘度計（東京計器製、25.0℃）で、10rpmから100rpmまで回転数を上昇させて粘度を測定したところ、図1の三角印ラインのように1から1.5 mPa・secとほぼ一定であった。逆に、高い回転数から下げながら測定したところ、同じラインに乗り、変化は見られず、1ヶ月放置しても低粘度のままであった。
25 この低粘度液状組成物を、市販のインクジェットプリンタ（セイコー・

エプソン社製、MJ-1000V2型)にて塗布することができた。なお、ダイヤモンド粒子100重量部に対するアミン性物質の量は2.0重量部である。

(比較例1)

- 5 前記のジメチルアミノエタノール添加前の液状組成物を、E型粘度計(東京計器製、25.0℃)で、回転数を変えて粘度を測定したところ、図1の菱形ラインに示すように、0.5rpmで300mPa・secと高く、20rpmでは15mPa・sec、100rpmで8mPa・secと低下した。次に、逆に回転数を下げて行くと、図1の白丸形ラインのよう
- 10 インのように、低回転数ほど粘度が高くなったが、先ほどより低い粘度を示した。この液状組成物を室温で2日間静置したところ、寒天状にゲル化していたが、容器を激しく振ると流動するようになった。

(実施例2)

- 石英製ビーカに0.6重量%のジメチルアミノエタノール水溶液をそ
- 15 れぞれ用意し、実施例1で得た精製ダイヤモンド微粒子濃度が10重量%となるように精製ダイヤモンド微粒子を加え超音波水槽に2時間浸して、水溶液中に精製ダイヤモンド微粒子を分散させてコロイド液を得、このコロイド液を数日間放置する。この液状組成物はゲル化することはない
- 20 なく、また層分離や沈殿を生じることもなく均一に分散した。なお、ダイヤモンド粒子100重量部に対するアミン性物質の量は6重量部である。

(実施例3)

- 実施例2において0.6重量%のジメチルアミノエタノール水溶液に換えて、2.0重量%のアミノエタノール水溶液を使用してコロイド液
- 25 を作成し、放置した。このコロイド液はゲル化することはない、また、層分離、沈殿も生ぜず均一に分散していた。ダイヤモンド粒子100重

量部に対するアミン性物質の量は20重量部である。

(実施例4)

ボールミル (Irie Shokai Co. Ltd) の容器に、
実施例1で得た精製ダイヤモンド微粒子 (グラファイト含有率1.2%)
5 2.27gと純水25.14gとジエチルアミノエタノール0.25g
と酸化ジルコニウムボール39.75gを入れ、72時間分散させる。
使用したボールは0.5mm径である。分散後のダイヤモンド微粒子液
状組成物は黒色の液体で、その分散質の平均粒径は78.4nm (大塚
電子株式会社製レーザーゼータ電位計ELS-8000で粒子径測定)
10 であり、ゲル化、沈殿および層分離はまったく発生しない安定した液状
組成物を得た。この液状組成物は、市販のインクジェットプリンタ (セ
イコー・エプソン社製、MJ-1000V2型) にて塗布することがで
きた。ダイヤモンド粒子100重量部に対するアミン性物質の量は11
重量部である。

15 (実施例5)

実施例4において、精製ダイヤモンドに換えて市販の粗ダイヤモンド
粉末 (グラファイト含有率7.0%) 2.69gと純水29.43gと
ジエチルアミノエタノール0.26gと酸化ジルコニウムボール39.
89gを入れ、72時間分散させる。分散後のダイヤモンド微粒子コロ
20 イド液はゲル化、沈殿および層分離はまったく発生しない安定した分散
液を得たが、分散質の平均粒径は344nm (上記測定器) であった。
ダイヤモンド粒子100重量部に対するアミン性物質の量は9.7重量
部である。

(実施例6)

25 実施例1において、ポリエチレングリコール600に代えて、分子量
50万のポリエチレングリコールを液状組成物に対して1%添加したと

ころ、粘度は回転数に関らず $10 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ でほぼ一定で、スピン塗布機で 1500 rpm 回転速度にて塗布し、乾燥して 300°C で1時間ホットプレートを使用し焼成した。その後常温でヘキサクロロジシロキサン蒸気処理し 300°C で1時間ホットプレートを使用し焼成した。

- 5 塗布膜は干渉色があり、膜厚は 510 nm でほぼ均一で、比誘電率は2.5であった。

(実施例7)

- 原料として直径 $1 \sim 3 \mu\text{m}$ のダイヤモンド微粒子粉末を用いた他は実施例1と同様にして酸化精製処理、精製、水洗して $\text{PH} 3.5$ の分散液
10 を得、乾燥した。この精製ダイヤモンド微粒子1重量部と、バインダーとしてフェノール樹脂1重量部と、溶剤としてメチルイソブチルケトン10重量部とをボールミルでよく混合してダイヤモンド微粒子液状組成物を得た。ついでこれを綿基布上にバーコータでウェット塗布厚 $80 \mu\text{m}$ に塗布し 80°C で加熱乾燥し、樹脂を架橋させた。得られたダイヤモンド微粒子膜状物が塗布された基布は、ガラスや金属の表面仕上げ用研
15 磨布として有用であった。

(実施例8)

- 実施例1の方法で精製したダイヤモンド微粒子を5重量%、ジメチルアミノエタノール0.5重量%となるように、 0.05 mm ジルコニア
20 製ビーズとともにビーズミル（コトブキ技研製）に仕込み、75分間解砕処理した。図3にビーズミル処理前（破線）及び後（実線）の粒子径分布を示す。この処理により凝集してピーク値 2700 nm であったダイヤモンド微粒子は、電子顕微鏡観察の一次粒子径に近いピーク値 7 nm の粒子径に解砕された。

- 25 (比較例2)

実施例1の方法で精製したダイヤモンド微粒子を5重量%含有させて

超音波分散した灰色の液状組成物に、市販の非イオン系界面活性剤（エマルゲン 120、花王(株)製）を前記組成物に対して 5 重量% 添加し、十分に攪拌混合した。この組成物の粘度挙動を実施例 1 と同様に測定したところ、0.5 rpm で 60 mPa・sec、20 rpm では 10 mPa・sec、100 rpm で 5 mPa・sec と、比較例 1 よりは粘度が低下したが、チクソトロピックな粘度挙動は変わらず、数日間放置すると寒天状にゲル化し、安定したコロイド液にはならなかった。

（比較例 3）

実施例 1 の原料ダイヤモンド微粒子が 5.8 重量%、陰イオン界面活性剤（MX-2045L：ナフタレンスルホン酸ホルムアルデヒド縮合物アンモニウム塩、花王(株)製）が 1.23 重量% になる様に水と共に、直径 2 mm のジルコニア製ボールの入ったボールミルに仕込み 48 時間解砕処理した。得られたこの液状混合物を取り出し 3 日間放置したところ、沈殿物が多量に発生し二層に分離し、安定なコロイド状液状組成物は得られなかった。

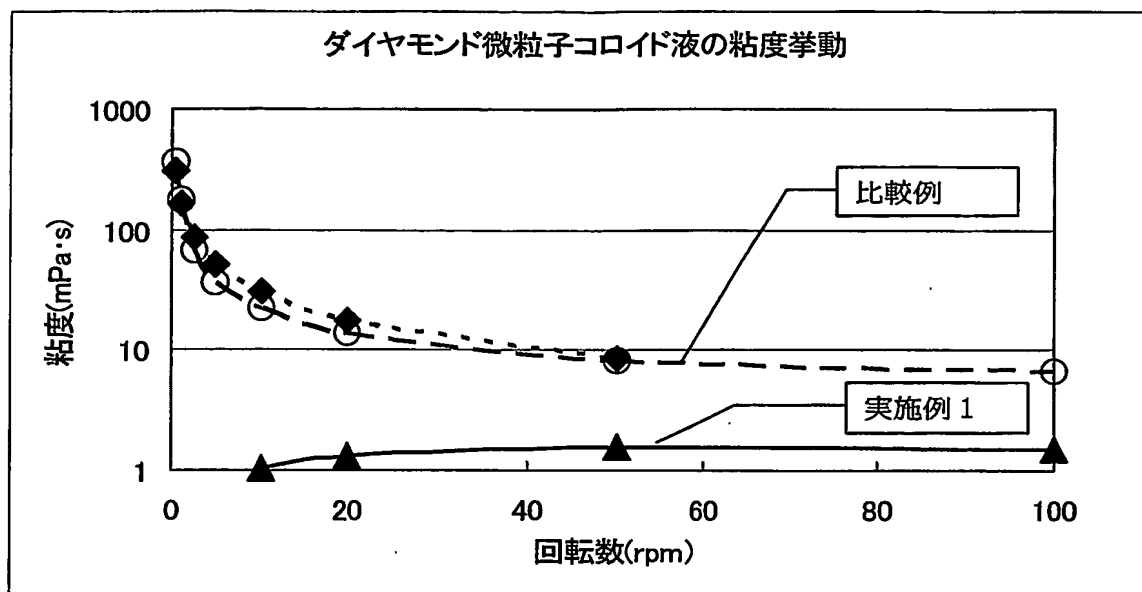
産業上の利用可能性

本発明では、工業上きわめて重要な、低粘度で且つ安定した粘度のダイヤモンド微粒子液状組成物を得ることができ、各種の塗布装置で塗布して均一なダイヤモンド微粒子膜が形成されることを見出した。この膜は、耐熱性及び熱伝導性に優れた無機質低誘電率膜で、比誘電率は 2.5 というきわめて低い値を実現した。これにより、多層配線半導体素子や半導体キャパシタばかりでなく、高性能コンデンサなどの高性能電子部品の製造が可能となった。また、液状組成物として、あるいは基布などに塗布して、研磨材としても利用できる。

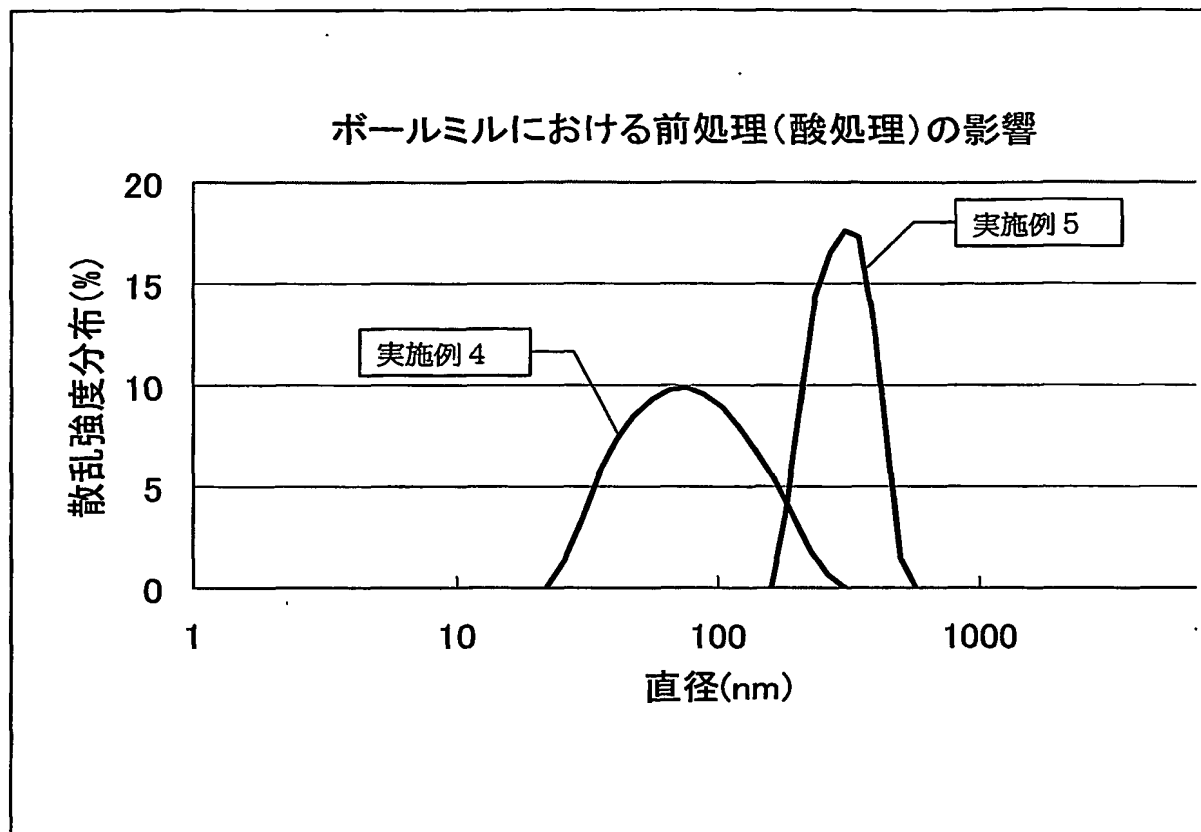
請求の範囲

1. 少なくともダイヤモンド微粒子、分散媒、およびアミン性物質を含有していることを特徴とする液状組成物。
2. 前記アミン性物質の沸点が50℃以上、300℃以下であることを特徴とする請求項1または2記載の液状組成物。
3. 前記分散媒が水、水溶性分散媒、または水と水溶性分散媒との混合物であることを特徴とする請求項1または2記載の液状組成物。
4. 請求項1から3のいずれかに記載の液状組成物を塗布して得られる、ダイヤモンド微粒子からなる低誘電率膜。
5. 請求項4記載の低誘電率膜を絶縁体として有する電子部品。
6. 請求項1から3のいずれかに記載の液状組成物から得られる、ダイヤモンド微粒子を含む研磨材。
7. 粗ダイヤモンド微粒子を、精製剤を含む溶液中で加熱処理した後、水洗し、アミン性物質の存在下に分散処理することを特徴とするダイヤモンド微粒子液状組成物の製造方法。
8. 前記精製剤が硫酸を含むことを特徴とする、請求項7記載の方法。

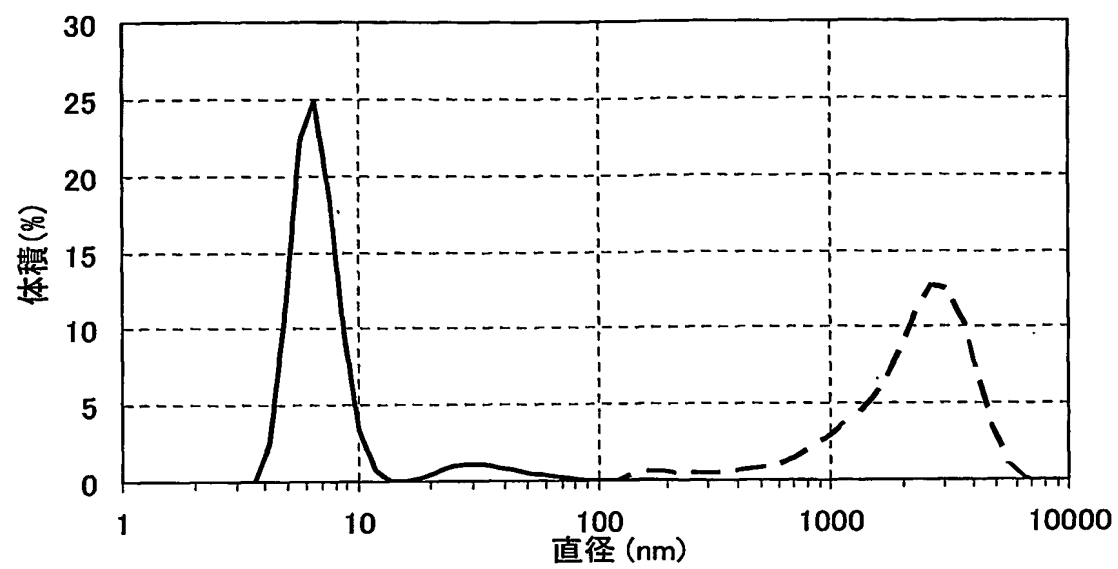
第1図



第2図



第3図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/015973

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H01L21/314, B24D3/00, C09K3/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01L21/314, B24D3/00, C09K3/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
<u>X</u> A	JP 11-181408 A (Teru Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 06 July, 1999 (06.07.99), Par. Nos. [0007] to [0009], [0020] Par. Nos. [0007] to [0009], [0020] (Family: none)	<u>1-3, 6</u> 7-8
<u>X</u> A	JP 2001-262129 A (Yokkaichi Gosei Kabushiki Kaisha), 26 September, 2001 (26.09.01), Par. Nos. [0007] to [0011], [0019] Par. Nos. [0007] to [0011], [0019] (Family: none)	<u>1-3, 6</u> 7-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
13 January, 2005 (13.01.05)Date of mailing of the international search report
01 February, 2005 (01.02.05)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/015973

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-110870 A (Japan Science and Technology Corp.), 12 April, 2002 (12.04.02), Par. Nos. [0019] to [0020] (Family: none)	1-5, 7-8
A	JP 9-25110 A (The Ishizuka Research Institute, Ltd.), 28 January, 1997 (28.01.97), Par. Nos. [0014] to [0029] & EP 753481 A1 & US 6337060 B1	7-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ H01L 21/314, B24D 3/00, C09K 3/14

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ H01L 21/314, B24D 3/00, C09K 3/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2005年
 日本国登録実用新案公報 1994-2005年
 日本国実用新案登録公報 1996-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
<u>X</u> A	JP 11-181408 A (輝化学工業株式会社), 1999. 07. 06 【0007】 - 【0009】, 【0020】 【0007】 - 【0009】, 【0020】 (ファミリーなし)	<u>1-3, 6</u> 7-8
<u>X</u> A	JP 2001-262129 A (四日市合成株式会社), 2001. 09. 26 【0007】 - 【0011】, 【0019】 【0007】 - 【0011】, 【0019】 (ファミリーなし)	<u>1-3, 6</u> 7-8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 01. 2005

国際調査報告の発送日

01. 2. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

和瀬田 芳正

4 R

2929

電話番号 03-3581-1101 内線 3469

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2002-110870 A (科学技術振興事業団) , 2002. 04. 12 【0019】 - 【0020】 (ファミリーなし)	1-5, 7-8
A	JP 9-25110 A (株式会社石塚研究所) , 1997. 01. 28 【0014】 - 【0029】 & EP 753481 A1 & US 6337060 B1	7-8

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.